First Hit

Previous Doc

Next Doc

Go to Doc#

**End of Result Set** 

Generate Collection Print

L3: Entry 2 of 2

File: JPAB

Sep 12, 1984

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 59161448 A

TITLE: STABILIZED POLYMERIC MATERIAL COMPOSITION

Abstract Text (2):

CONSTITUTION: 100pts.wt. of a polymeric material is compounded with  $0.001 \sim 5 \mathrm{pts.wt.}$  of a compound of formula I (R1 is  $1 \sim 8 \mathrm{C}$  alkyl; R2 is H or  $1 \sim 8 \mathrm{C}$  alkyl; X is group of formula II $\sim$ V; R3 is  $1 \sim 5 \mathrm{C}$  alkyl; Y is group of formula VI or VII; n is  $0 \sim 5$ ). The composition is preferably compounded further with a phenolic antioxidant, a sulfurbased antioxidant, a phosphorus-containing compound such as phosphite, and a photostabilizer.

<u>Current US Cross Reference Classification</u> (2): 525/167

Previous Doc Next Doc

Go to Doc#

# (9 日本国特許庁 (JP)

⑩特許出願公開

# ⑩公開特許公報(A)

昭59—161448

①Int. Cl.<sup>3</sup> C 08 K 5/34 // C 07 D 211/46 491/113 識別記号 CAB 庁内整理番号 6681-4 J 7138-4 C 8115-4 C ❸公開 昭和59年(1984)9月12日

発明の数 1 審査請求 未請求

(全 9 頁)

# **匈安定化高分子材料組成物**

②特

顧 昭58-37122

❷出.

願 昭58(1983)3月7日

**砂発明者 皆川源信** 

| 首川原信 | 浦和市白幡五丁目2番13号アデ

カ・アーガス化学株式会社内

**70**発 明 者 中原豊

浦和市白幡五丁目2番13号アデカ・アーガス化学株式会社内

# ②発 明 者 平井文二

浦和市白幡五丁目2番13号アデ カ・アーガス化学株式会社内

②発明 者 高橋雅之

浦和市白幡五丁目2番13号アデ カ・アーガス化学株式会社内

⑦出 願 人 アデカ・アーガス化学株式会社 東京都荒川区東尾久八丁目4番

1号

仍代 理 人 弁理士 羽鳥修

#### 明 和 18

## 1. 発明の名称

安定化高分子材料組成物

#### 2. 特許請求の顧用

高分子材料 1 0 0 重量部に、次の一般式 (I) で表される化合物 0 0 0 1 ~ 5 重量部を添加してなる安定化高分子材料組成物。

(上式中、 $R_1$ は炭素数  $1\sim 8$  のアルキル基を示し、 $R_2$ は水素原子または炭素数  $1\sim 8$  のアルキル基を示す。

R3は炭素数1~5のアルキル基を示す。

#### □ は U ~ D を 示 す。 )

#### 3. 発明の詳細な説明

本発明は耐光性及び酸化安定性の改善された高分子材料組成物、詳しくは、2,2,6,6—テトラメチルピペリジル基を育するポリオールの合フェノールカルボン酸エステルを含有せしめてなる安定化高分子材料組成物に関する。

### 特開昭59-161448(2)

ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等の高分子材料は一般に光の照射及び酸化により劣化し、変色あるいは機械的強度の低下等を引き起こし、長期の使用に耐えないことが知られている。

そこで高分子材料の劣化を防止するために、従来積々の安定剤が単独で、あるいは数種を組み合わせて用いられており、アルキル化ヒドロキシフェニルアルカン酸のエステル等のフェノール系抗酸化剤及びヒンダードピペリジン系の光安定剤の組合せも知られている。

また、近年、同一分子中にフェノール系抗酸化 剤基とヒンダードピペリジン基を結合させること が試みられており、アルキル化ヒドロキンフェニ ルアルカン酸と2, 2, 6, 6—テトラメチルピ ペリジン基を有するアルコールとのエステルも提 客されている。

例えば、特開昭 4 8 -- 6 5 1 8 2 号公報には 2 , 2, 6, 6 -- テトラメチル-- 4 -- ピペリジノー ルとのエステルが、特開昭 5 5 -- 9 0 6 4 号公報 には 2、 2、 6、 6 ―テトラメチル― 4 ―ピベリンノールのアルキレンオキンド付加物とのジェステルが、特開昭 5 5 ― 1 1 5 0 7 号公報には 2、 2、 6、 6 ―テトラメチル― 4 ―ピベリドンのスピロケタールアルコールのアルキレンオキンド付加物とのジェステルが、特開昭 5 5 ― 3 6 4 8 2 号公報にはアルキレンピス (2、 2、 6、 6 ―テトラメチル― 4 ―ピベリジノール) のジェステルが開示されている。また特開昭 5 7 ― 1 3 6 5 6 7 号公報には 2、 2、 6、 6 ―テトラメチル― 4 ―ピベリジノールのアルキル化ヒドロキシフェニルアルカン酸のエステルのグリンドール付加物が開示されている。

しかしながら、これら公報記載の化合物はいずれもモノエステルあるいはジエステル化合物であり、その安定化効果が不充分であり、また比較的低分子量化合物である為に、高分子材料の高温加工時に揮散したり、水あるいは有機溶媒によって抽出されてしまう等の欠点があり、実用上不満足なものであった。

本発明者等は、安定化能に優れ、また揮発性、耐水性等の良好な化合物を見い出すべく観意検討を重ねた結果、2,2,6,6—テトラメチルピペリジル基を有する3 価以上のポリオールと特定の含フェノールカルボン酸とのエステルが良好な性能を有することを見い出し、本発明を完成したものである。

即ち、本発明は、高分子材料100重量部に、次の一般式(I)で表される化合物0.001~5 重量部を添加してなる安定化高分子材料組成物を 提供するものである。

(上式中、R<sub>1</sub>は炭素数1~8のアルキル基を示し、R<sub>2</sub>は水素原子または炭素数1~8のアルキル基を示す。

a は 0 ~ 5 を示す。)

以下本発明で用いられる前配一般式 (I) で表 される化合物について詳述する。

RI及び R2で 妻されるアルキル基としてはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソプチル、第 3 ブチル、第 3 ブチル、アミル、第 3 アミル、ヘキシル、オクチル、第 3 オクチル、シクロペンチル、シクロヘキシル等があげられ、R3で妻されるアルキル基としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、アミル等があげられる。

従って、本発明で用いられる前記一般式(I) で表される化合物としては次の表──1に示すよう な化合物があげられる。尚、衷中、

# 特開昭59-161448 (4)

No. 1 1

$$\begin{pmatrix}
z \\
BO - C_2 B_4 - CO - N - CB_2
\end{pmatrix}$$

$$2 CH - OC - C_2 B_4 - OC - OH$$

$$Z$$

$$\begin{pmatrix}
z & 0 & C_2H_5 & 0 \\
H0 & C_2H_4 & C_0 & C_1H_2
\end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix}
z & 0 & C_2H_5 & 0 \\
H0 & C_1 & C_2 & C_2H_4
\end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix}
z & 0 & C_2H_5 & 0 \\
Z & 0 & C_2H_4
\end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix}
z & 0 & C_2H_5 & 0 \\
Z & 0 & C_2H_4
\end{pmatrix}$$

本発明で用いられる前配一般式.(I) で表される化合物は、例えば、´2, 2, 6, 6—テトラメチルピペリジル基を有するポリオールと式

R<sub>1</sub> HO - CaH<sub>Zn</sub>-C00H で表されるカルボン酸ある

いはその低級アルキルエステルを反応させること によって容易に製造することができる。

次に、本発明で用いられる化合物の具体的な合成例を記すが、本発明は下配の合成例によって制限を受けるものではない。

# 表-1, 14.1 化合物の合成

合成例

N-(2', 3'-ジヒドロキシブロピル)2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジノール1.85g、メチル-3-(3', 5'-ジー第3ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート7.7g及びリチウムアミド0.06gをとり、窒素気液下120~130でで12時間加熱機弾した。冷却後、酢酸0.5g及びキシレン50alを加え環沖後、水洗、乾燥した。キシレンを留去した後メタノールにより再結晶し、融点107~110での白色粉末の生成物(目的物)を得た。

本発明は、前記一般式(I)で表される化合物を高分子材料に添加してその耐光性を改善するものであり、その添加量は、通常、高分子材料 I 0 0 監量部に対し 0.01~5 重量部、好ましくは 0.01~3 重量部である。

特問昭59-161448(5)

三元共重合体、塩化ビニル―スチレン―アクリロ ニトリル共重合体、塩化ビニル--ブタジエン共重 合体、塩化ビニル--イソプレン共重合体、塩化ビ ニル―塩素化プロピレン共重合体、塩化ビニル― 塩化ビニリデン一酢酸ビニル三元共重合体、塩化 ビニル―アクリル酸エステル共重合体、塩化ビニ ルーマレイン酸エステル共重合体、塩化ピニル--メタクリル酸エステル共重合体、塩化ビニル---ア クリロニトリル共重合体、内部可塑化ポリ塩化ビ ニルなどの含ハロゲン合成樹脂、石油樹脂、クマ ロン樹脂、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、アク リル樹脂、スチレンと他の単量体(例えば無水マ レイン酸、ブタジエン、アクリロニトリルなど) との共重合体、アクリロニトリル―プタジェン― スチレン共重合体、アクリル酸エステル--ブタジ エン─スチレン共重合体、メタクリル酸エステル ─ブタジエン─スチレン共重合体、ポリメチルメ タクリレートなどのメタクリレート樹脂、ポリビ ニルアルコール、ポリピニルホルマール、ポリビ ニルブチラール、直鎖ポリエステル、ポリフェニ

レンオキシド、ポリアミド、ポリカーポネート、ポリアセタール、ポリウレタン、繊維素系出版、あるいはフェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、シリコーン樹脂などをあげることができる。更に、イソプレンゴム、ブタジエンゴム、アクリロニトリル―ブタジエン共重合ゴムなどのゴム類やこれらの樹脂のブレンド品であってもよい。

また、透散化物あるいは放射線等によって架橋させた架橋ポリエチレン等の架橋重合体及び発泡剤によって発泡させた発泡ポリスチレン等の発泡環合体も包含される。

本発明の組成物にさらに周知のフェノール系の抗酸化剤を添加することによって酸化安定性をさらに改善することができる。これらのフェノール系抗酸化剤としては例えば、2,6-ジー第3ブチルーp--クレゾール、2,6-ジフェニルー4--オクトキシフェノール、ステアリルー(3,5-ジーメチル--4--ヒドロキシベンジル)チオグ

リコレート、ステアリル--β-- (4--ヒドロキシ 一3.5―ジ―第3ブチルフェニル)プロピオネ ート、ジステアリル―3,5―ジ―第3プチル― 4─ヒドロキシベンジルホスホネート、2. 4. 6―トリス(3′、5′―ジ―第3プチル―4― ヒドロキシベンジルチオ)1.3.5.―トリア ジン、ジステアリル(4―ヒドロキシ―3―メチ ル―5―第3ブチル)ベンジルマロネート、2. 2' ―メチレンピス (4―メチル― 6―第3ブチ ルフェノール)、4、4' ―メチレンピス(2、 6 --ジ--第3ブチルフェノール)、2, 21 --メ チレンピス(6―(1―メチルシクロヘキシル) p - クレゾール) 、ピス (3, 5—ピス (4—ヒ ドロキシ―3―第3プチルフェニル) ブチリック アシド) グリコールエステル、4. 4' ―ブチル デンピス (6 ―第3ブチル―m-クレゾール)、 2. 2' -エチリデンピス (4, 6-ジー第3プ チルフェノール)、2,2'―エチリデンピス( 4-第2プチル-6-第3プチルフェノール)、 1. 1. 3ートリス (2-メチル-4-ヒドロキ

シー5-第3プチルフェニル) ブタン、ビス〔2 --第3ブチル--4--メチル--6--(2--ヒドロキ シー3-第3ブチルー5-メチルベンジル)フェ ニル) テレフタレート、1、3、5一トリス(2 , 6--ジメチル--3--ヒドロキシ--4--第3ブチ ル) ベンジルイソシアヌレート、1, 3, 5---ト リス(3,5―ジ―第3プチル―4―ヒドロキシ ベンジル) ―2、 4、 6―トリメチルベンゼン、 テトラキス(メチレン―3― (3.5-ジー第3 ブチル―4―ヒドロキシフェニル)プロピオネー ト) メタン、1. 3. 5ートリス (3. 5ージー 第3プチル-4-ヒドロキシベンジル) イソシア ヌレート、1、3、5―トリス((3、5―ジ― 第3ブチル―4―ヒドロキシフェニル)プロピオ ニルオキシエチル) イソシアヌレート、2一オク チルチオー4. 6ージ(4ーヒドロキシー3. 5 ―ジ―第3ブチル)フェノキシ―1,3,5―ト リアシン、4.4′ ―チオピス (6―第3プチル・ ---m--クレゾール)などのフェノール頻及び 4 . 4、一ブチリデンピス(2一第3プチル—5一メ

### 特別昭59-161448 (6)

チルフェノール)の炭酸オリゴエステル(例えば 重合度2.3.4.5.6.7.8.9.10な ど)の多価フェノール炭酸オリゴエステル類が、 あげられる。

本発明の組成物にさらに顕貴系の抗酸化剤を加えてその酸化安定性の改善をはかることもできる。これらの破貴系抗酸化剤としては、例えばジラウリルー、ジミリスチルー、ジステアリルーなどのジアルキルチオジロピオスート及びブチルー、オクチルー、ラウリルー、ステアリルーなど例えばグリセリン、トリメチロールエタンストトリール、ベンタエリスリトール、ストアルにはベンタエリスリトールテトララウリルチオプロピオネート)があげられる。

本発明の組成物に、さらにホスファイト等の含 リン化合物を添加することによって、耐光性及び 耐熱性を改善することができる。この合リン化合 物としては、例えばトリオクチルホスファイト、

トリラウリルホスファイト、トリデシルホスファ イト、オクチル―ジフェニルホスファイト、トリ ス (2.4―ジ―第3プチルフェニル)ホスファ イト、トリフェニルホスファイト、トリス(ブト キシエチル)ホスファイト、トリス(ノニルフェ ニル) ホスファイト、ジステアリンペンタエリス リトールジホスファイト、テトラ(トリデシル) — 1 , 1 . 3 — トリス (2 —メチル— 5 —第 3 ブ チル―4―ヒドロキシフェニル)ブタンジホスフ ァイト、テトラ (C<sub>12</sub> ~15 混合アルキル) ---4, 4、一イソプロピリデンジフェニルジホスファイ ト、テトラ (トリデシル) ―4.4′ ―ブチリデ ンピス (3 --メチル-- 6 --第3プチルフェノール ) ジホスファイト、トリス (3, 5 ──ジ──第 3 ブ チル―4―ヒドロキシフェニル)ホスファイト、 トリス(モノ・ジ混合ノニルフェニル)ホスファ イト、水素化──4.4′ ──イソプロピリデンジフ ェノールポリホスファイト、ピス(オクチルフェ ニル)・ビス(4.4′ ―ブチリデンビス (3― メチル―6―第3ブチルフェノール)}・1.6

---ヘキサンジオールジホスファイト、フェニル・ 4. 4' --イソプロピリデンジフェノール・ペン タエリスリトールジホスファイト、ピス(2,4 --ジ-第3プチルフェニル) ペンタエリスリトー ルジホスファイト、ピス (2. 6 ― ジ― 第 3 ブチ ルー4ーメチルフェニル) ペンタエリスリトール ジホスファイト、トリス(4,4′ ―イソプロピ リデンピス (2 ―第 3 ブチルフェノール)〕 ホス ファイト、フェニル・ジイソデシルホスファイト 、ジ (ノニルフェニル) ペンタエリスリトールジ ホスファイト、トリス(1.3―ジ―ステアロイ ルオキシイソプロピル) ホスファイト、 4 . 4 ' ---イソプロピリデンピス (2 ---第 3 プチルフェノ ール)・ジ(ノニルフェニル)ホスファイト、3 スファフェナンスレン―10―オキサイド、テト ラキス (2,4―ジ―第3ブチルフェニル)―4 , 4' ―ピフェニレンジホスホナイトなどがあげ られる。

本発明の組成物に他の光安定剤を添加すること

によってその耐光性をさらに改善することができ る。これらの光安定剤としては、例えば、2---ドロキシ―4―メトキシベンゾフェノン、2ーヒ ドロキシー 4 ー n ― オクトキシベンゾフェノン、 2, 2' <del>--</del>ジ--ヒドロキシ-- 4--メトキシベンゾ フェノン、2,4―ジヒドロキシベンゾフェノン 等のヒドロキシベンゾフェノン鎖、2―(2′ ― ヒドロキシー3'ーも一プチルー5'-メチルフ ェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2' - L F u + y - 3', 5' - y - t - 7 f ルフェニル) --5 --クロロベンゾトリアゾール、 2-(2'-ヒドロキシー5'-メチルフェニル ) ベンゾトリアゾール、2--(2'--ヒドロキシ -3' 5' -ジーtーアミルフェニル) ベンゾト リアゾール等のベンゾトリアゾール観、フェニル サリシレート、p-t-ブチルフェニルサリシレ '-ド、2, 4―ジーt―ブチルフェニル―3, 5 ージーtーブチルー 4 ―ヒドロキシベンゾエート 、ヘキサデシルー3,5<del>ージーt</del>ープチル**ー t**ー ヒドロキシベンゾエート等のペンゾエート類、2

特開昭59-161448(ア)

2'ーチオピス(4ーtーオクチルフェノール) Ni塩、(2、2'ーチオピス(4ーtーオクチルフェノラート))ーロープチルアミンNi、(3、5ージーtープチルー4ーヒドロキシベンジル)ホスホン酸モノエチルエステルNi塩等のニッケル化合物類、αーシアノーβーメチルーβー(ρーメトキシフェニル)アクリル類メチル等の置換アクリロニトリル類及びNー2ーエチルフェニルーN'ー2ーエトキシー5ー第3プチルフェニルシュウ酸ジアミド、Nー2ーエチルフェニルーN'ー2ーエトキシフェニルシュウ酸ジアミド等のシュウ酸ジアニリド類があげられる。

その他必要に応じて、本発明の組成物には重金属不活性化剤、造核剤、金属石けん、有機錫化合物、可塑剤、エポキシ化合物、餌料、充塡剤、発泡剤、帯電防止剤、難燃剤、清剤、加工助剤等を包含させることができる。

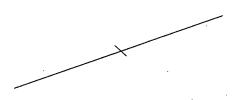
本発明によって安定化された高分子材料は極め て多様な形で、例えばフィルム、繊維、テープ、 シート、各種成型品として使用でき、また、館料 、ラッカー用結合剤、接着剤、パテ及び写真材料 における基材としても用いることができる。

次に本発明を実施例によって具体的に説明する。 しかしながら、本発明はこれらの実施例によって 限定されるものではない。

#### 実施例1

ポリプロピレン 100 重量部 安定剤(表---2) 0.2

上記配合にて厚さ 0.3 amのプレスシートを作成し、高圧水銀ランプを用いての耐光性試験及び 160 でのギャーオーブン中での耐熱性試験を行った。また 80 での熱水に 15時間浸漬後のシートについても同様の試験を行った。その結果を表—2に示す。



\* — ·

		<del></del>			
1	安定 剤	耐光性		耐無性	
No.		オリジナル	浸漬シート	オリジナル	漫画シート
比較例	A * 1	時間 120	時間 96	時間 256	時間 216
1 — 2	B * 2	120	. 104	256	232
1 - 3	C * 3	144	120	232	208
実施例 1 — 1	No. 1 (表-1)	288	264	384	360
1 2	Na 3 (~ )	240	216	304	288
1 3	No. 4 (** )	288	272	. 376	352
1 4	Na 5 (* )	264	240	360	336
1 5	Ns 8 (* )	248	224	376	360
1 6	No.10 (* )	224	200	352	336
1 7	Na.11 (~ )	298	272	328	312
1 — 8	No.14 (* )	288	248	336	328

. \* 1 : A :

### (以下の各実施例においても同じ)

# 実施例 2

通常の安定剤は樹脂の高温加工時に揮発、分解 等によりその効果が著しく失われることが知られ ている。

本実施例では押し出し加工を繰り返し行うことにより高温加工による影響を確かめた。

次の配合により樹脂と添加剤をミキサーで5分

# 特問昭59-161448 (8)

**д** — з

間混合した後、押し出し機でコンパウンドを作成した。(シリンダー温度230で、240で、ヘッドダイス温度250で、回転数20rpm)押し出しを5回繰り返し行った後このコンパウンドを用いて試験片を射出成形機で作成した。(シリンダー温度240で、ノズル温度250で、射出圧475kg/cl)

得られた試験片を用いて高圧水銀ランプでの耐光性試験及び160℃のオーブン中での耐熱性試験をおこなった。また、押し出し1回のものについても同様に試験した。その結果を表—3に示す。

エチレン―プロピレン共譲合樹脂 1 0 0 重量部 ステアリン酸カルシウム 0.2 ジラウリルチオジプロピオネート 0.3 安定剤(安一3) 0.1

		耐光性	耐 熱 佳	
No.	安 定 剤	1回 5回 押し 出し	1回 5回押し出し	
比較例 2 — 1	Α .	時間 時間 72 72	時間 時間 280 264	
2 2	В	72 72	264 256	
2 — 3	С	72 72	264 240	
実施例2-1	No. 1 (衷-1)	152 144	432 424	
2 2	No. 2 ( ~ )	144 128	408 384	
2 — 3	No. 4 (** )	144 144	424 408	
2 4	No. 6 (* )	120 104	376 336	
2 — 5	No. 7 ( 🚧 )	128 120	400 376	
2 — 6	No. 9 ( ~ )	128 128	424 408	
2 — 7	Na 12 ( ~ )	144 128	384 360	
2 — 8	No.13 (* )	152 144	408 384	

### 実施例3

ポリエチレン 1 0 0 重量部 Ca-ステアレート 1.0 安定剤 (表―4) 0.2

上記配合物を混練後プレスして厚さ 0.5 mmのシートを作成した。このシートを用いてウエザオメーター中で耐光性を測定し、脆化するまでの時間を測定した。また、150 でのオーブン中での熱安定性も測定した。その結果を表—4に示す。



No.	安 定 剤	耐光性	耐熟性
比較例 3-1	A	時間 660	時間 3 2 0
3 — 2	В	640	3 1 2
3 — 3	с .	700	3 1 2
実施例 3 — 1	No. 1 (表-1)	920	4 4 8
3 — 2	No. 4 (~ )	900	424
3 - 3	No. 7 (* )	840	400
3 — 4	No.10 ( " )	860	424
3 — 5	Na.11 (** )	940	4 ,3 2
3 — 6	No.14 ( " )	860	4 4 8

# 特開昭59-161448 (9)

#### 実施例 4

上記配合物をロール線り後プレスして厚さ3mmのシートを作成した。このシートを用いウエザオメーターで800時間照射後の抗張力残率を測定した。また、210でで10分間加熱後のシートの色を測定し、10段階にわけて評価した。尚、1は白色を示し、10は福色を示す。その結果を表—5に示す。

			<del>,</del> -
No.	安定射	抗强力残率	シートの色
比較例		%	
4-1	なし	38	9
4 2	A	5 1	5
4 3	В	4 9	5
4 - 4	С	5 2	6
実施例 4 — 1	No. 2 (表-1)		_
-	M 2 (2X-1)	6 7	3
4 — 2	No. 4 ( <  )	6 9	2
4 — 3	No. 8 (* )	6 5	4
4 — 4	No. 9 (* )	6 5	3
4 5	Na 12 (~ )	6 1	2

#### 客施係5

ポリウレタン樹脂 100 重量値 (旭電化製U-100)

0. 7

Ba-ステアレート

2n-ステアレート 0.5

安定剤 (表---6) 0.

上記配合物を70℃で5分間ロール上で混練し、120℃で5分間プレスして厚さ0.5mmのシートを作成した。このシートをフェードメーターにて50時間照射後の伸び残率を測定した。その結果を表一6に示す。

#### · --- 6

No.	安	!	定	剤		伸び	残率
比較例 5-1	A					4	8 <b>%</b>
5 — 2	В					4	6
5 <del>-</del> 3	С					5	1
実施例 5-1	No.	1	( 2	Ę—	1)	6	5
5 <b>— 2</b>	No.	5	(	•	)	6	2
5 — 3	No.	7	Ċ	-	)	6	4
5 4	No. 1	1	(	~	)	6	5
5 — 5	No. 1	2	(		)	6	2